

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-264232

(43)Date of publication of application : 20.09.1994

51)Int.Cl.

C23C 14/34

C22C 27/02

C22F 1/18

21)Application number : 05-079055

(71)Applicant : NIKKO KINZOKU KK

22)Date of filing : 12.03.1993

(72)Inventor : SHIMIZU FUMIYUKI

YANO TOSHIHIRO

UMEMOTO YASUSHI

54) TA SPUTTERING TARGET AND ITS PRODUCTION

57)Abstract:

URPOSE: To form a thin film excellent in uniformity by using a target formed from a plastically worked material of Ta having a specified content of gaseous components and a specified average grain diameter.

ONSTITUTION: This Ta sputtering target is formed from a plastically worked material of refined Ta having 100ppm total content of gaseous components and $\leq 1\text{mm}$ average grain diameter. A Ta ingot having $\leq 100\text{ppm}$ total content of gaseous components is cold-worked at $\geq 90\%$ rate of working and recrystallized by heat treatment at $900\text{-}1,300^\circ\text{C}$ heating temp. in $\leq 0.1\text{mmbar}$ vacuum. The target can be expected to contribute largely toward improving the performance of a member utilizing a thin Ta or Ta alloy film.

LEGAL STATUS

Date of request for examination] 15.04.1999

Date of sending the examiner's decision of rejection] 29.01.2002

Kind of final disposal of application other than the
examiner's decision of rejection or application

converted registration]

Date of final disposal for application]

Patent number]

Date of registration]

Number of appeal against examiner's decision of
rejection]Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

Date of extinction of right]

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

**** shows the word which can not be translated.

In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

Claim(s)]

Claim 1] A total gas-constituents content is 100 ppm. Spatter RINGUTA-get made from Ta characterized by consisting of the plastic-working material of Ta which the place whose diameter of average crystal grain it is the following and is 1mm or less ingoted.

Claim 2] a total gas-constituents content -- 100 ppm Ta ingot which is the following -- working ratio: -- the manufacture method of the spatter RINGUTA-get made from Ta according to claim 1 characterized by including the process made to heat-treat and recrystallize at heating temperature: 900-1300 degree C in the vacuum of 0.1 or less mmbar after carrying out cold forging on 90% or more of conditions

[translation done.]

* NOTICES *

Japan Patent Office is not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] This invention relates to the spatter RINGUTA-get made from Ta (tantalum) suitable as objects for heat-absorbing-glass covering, such as manufacture of a semiconductor device, and an automobile, and its manufacture method.

[0002]

[Description of the Prior Art] In the insulator layer between the electrode wiring layers in the former and a semiconductor device, it is SiO₂. Although the film was applied, high integration of LSI progresses in recent years, and it is SiO₂. Since the dissatisfaction over a film came out, it is SiO₂. It is a substitute to a film. Ta₂O₅ The attempt which applies a thin film is progressing.

[0003] and -- this -- Ta₂O₅ Although the CVD which uses organic reactant gas, and the sputtering method which carries out the spatter of the spatter RINGUTA-get made from Ta (it is henceforth called "Ta target" for short) in "argon-oxygen mixed gas" are used for formation of a thin film, it is supposed from a synthetic viewpoint that the sputtering method is advantageous.

[0004] On the other hand, although refractory-metal silicide thin films, such as Mo and W, have been used as an electrode of VLSI until now, recent years come, Ta silicide film attracts attention, and promising ** is carried out as the next electrode material. Although some methods can be considered also to formation of this Ta silicide film, Ta film is made to adhere on polycrystal silicon by the sputtering using Ta target as one, and there is technique which silicon and Ta are made to react after that and is used as Ta silicide film.

[0005] Moreover, recently, the attempt which applies the thin film of Ta as a heat ray absorption film which covers front faces, such as glass for automobiles, also comes to be made, and the increase of need of Ta target is expected also from such a direction.

[0006] By the way, the aforementioned Ta target used in order to form thin films, such as "Ta" and "Ta silicide", is manufactured by the method of dissolving the metal Ta industrially obtained by the electrolytic decomposition process etc. now, and making Ta ingot, and processing this and making it into a request configuration and a size.

[0007] however, we were anxious about having ***** in ** on performances, such as "Ta" formed although an application field is the thin film of "Ta" expanded remarkably and "Ta alloy" and according to a detailed examination of this invention person etc. it is slight as mentioned above when based on sputtering or those of "Ta alloy" with disagreeable ** as for which a thin film lacks in homogeneity, a semiconductor device which applies this, and heat absorbing glass

[0008] Since it is such, it is that the purpose wipes away the above-mentioned problem pointed out to sputtering which used Ta target, and this invention establishes the means obtained by being stabilized in a uniform and highly efficient thin film.

[0009] this invention person etc. came to acquire the following knowledge, as a result of repeating research wholeheartedly that the above-mentioned purpose should be attained.

A) Although the grain size number of Ta target used to the homogeneity of the thin film formed in sputtering using Ta target has influenced greatly and it becomes such a desirable inclination that this grain size number is fine, the homogeneous improvement effect of the thin film formed when especially the diameter of average crystal grain is adjusted to 1mm or less becomes remarkable much more.

[0010] B) However, although surely "grain refining of Ta target" has higher efficacy in equalization of the thin film formed in process in which detailed examination is advanced Even if it is the case where a limitation is in the homogeneous improvement effect of the aforementioned thin film only by detailed-ization of crystal grain, and the 27. diameter of average crystal grain of Ta target is set to 1mm or less On the occasion of membrane formation operation on a industrial scale, it became clear that it is when it is difficult for the grade which can be enough satisfied as the object for semiconductor devices, an object for heat absorbing glass, etc. to always form a uniform thin film in stability.

[0011] C) However, it is 100 ppm which does not have a similar case considering the sum total content of the gas constituents O, N, C, S, H, etc. in Ta target, as an industrial product. After decreasing even below If the diameter of average crystal grain is adjusted to 1mm or less, the homogeneity of the thin film formed will improve by leaps and bounds, and most of the bad influence to product performance which originated in "the heterogeneity of the thin film obtained" also in membrane formation operation of a industrial scale, such as a semiconductor device and heat absorbing glass, will be stopped by the grade which can be disregarded.

[0012] D) In addition, the sum total content of gas constituents is 100 ppm. The following aforementioned Ta targets For example, once hold the raw material molten metal which carried out electron beam melting in cold HA-SU of a water cooling type, and the fly off of the impurity is carried out to vacuum environment. "drawn out from a lower part as an ingot, making this overflow into a mould and making it solidify continuously -- electron beam cold HA - a pickpocket -- "the casting ingot of Ta" obtained by melt method" can be manufactured as start material

E) Moreover, Ta target of the detailed organization of 1mm or less in the diameter of average crystal grain is realizable by giving strong processing between the colds to "the ingot material of Ta" with few above-mentioned amounts of gas constituents, and performing recrystallization heat treatment of specific conditions to this.

[0013] this invention is completed based on the above-mentioned knowledge matter etc., and 100 ppm of total gas-constituents contents are the following about "Ta target. It has the big feature at the point constituted from plastic-working material of Ta which the place and whose diameter of average crystal grain are 1mm or less ingoted."

furthermore, Ta ingot 100 ppm of whose gas-constituents contents of "sum total are the following -- working ratio:, after carrying out cold forging on 90% or more of conditions the inside of the vacuum not more than 0.1mmbar -- heating temperature: -- by taking in the process made to heat-treat and recrystallize at 900-1300 degrees C The gas-constituents content of the aforementioned sum total is 100 ppm. It is characterized by the point that the diameter of average crystal grain is stabilized and enabled it to manufacture Ta target 1mm or less below."

[0014] Here, it is 100 ppm in total about the gas-constituents content in Ta target. Having limited the following Especially a total gas-constituents content is 100 ppm. The burst size of the gas at the time of using it in a high vacuum, when it became below decreases sharply, and particle generating is almost lost. The diameter of average crystal grain sets at Ta target 1mm or less, and the sum total of a gas-constituents content is 100 ppm. It is to be improved by leaps and bounds and for the homogeneity (thickness, film property) of membrane formation stability of the thin film formed by carrying out sputtering to it being the following to improve remarkably. 100 ppm of and total gas-constituents contents the following Ta targets -- obtaining -- "-- electron beam cold HA - a pickpocket -- although it is as start material, then the good thing having described previously the "casting ingot of Ta" obtained by melt method", if it can do, as for each gas constituents and the other impurity components which are contained in a target, decreasing even on the following level is desirable

<Gas constituents> O:50 ppm Following N:50 ppm Following C:50 ppm The following and S:10 ppm Following H:10 ppm Following.

<Other impurity components> Less than [Nb:0.01wt%] Less than [W:0.05wt%] Less than [Fe:0.01wt%], less than [aluminum:0.01wt%] Less than [nickel:0.01wt%].

[0015] Moreover, for having limited the diameter of average crystal grain of Ta target with 1mm or less, if the diameter of average crystal grain is over 1mm as mentioned above, the gas-constituents content in a metaphor Ta target is 100 ppm in total. It is because the homogeneity of the thin film formed of sputtering though it is the following is not enough, wipes the bad influence to product performance, such as a semiconductor device and heat absorbing glass, and stops going out. Furthermore, it is because neither the fine crystal grain organization which mentioned above, nor a gas-constituents content can be attained in powder metallurgy material to have made Ta target into "ingot material."

[0016] When this working ratio is less than 90%, even if it performs recrystallization heat treatment, it is uniform to face to manufacture Ta target on the other hand, and to carry out cold forging of the Ta ingot by 90% or more of working ratio first, and it is because crystal grain not more than mean-particle-diameter: 1mm cannot be obtained.

[0017] Moreover, having limited recrystallization heat treatment conditions like the above is based on the following reason.

a) When the vacuum grade of heating environmental heating environment exceeds 0.1mmbar(s), it is for a bad influence to appear in the performance of the thin film which a processed material front face is polluted for oxygen, nitrogen, etc., and is obtained in stock utilization or sputtering.

b) sufficient recrystallization should do as heating temperature heating temperature being less than 900 degrees C -- since there is nothing, if the uniform and detailed grain structure is not obtained but it heats on the other hand 2-8. exceeding 1300 degrees C -- big-and-rough-izing of crystal grain -- inviting -- too -- homogeneity -- do not come and obtain the detailed grain structure And Ta target is cut down by material to machining by which cold forging and recrystallization heat treatment were performed on the above-mentioned conditions.

[0018] by the way, Ta ingot with which cold forging is presented -- a total gas-constituents content -- 100 ppm although what was ingoted is used so that it may become the following, in order to obtain Ta ingot of such a high grade industrially -- "-- electron beam cold HA - a pickpocket -- melt method" is applied this "-- electron beam cold HA - a pickpocket -- with melt method" Cold HA-SU 3 of a copper water cooling type is installed ahead of the water cooling type copper mould 2 installed in the dissolution chamber 1 of an electron beam melting facility so that it may illustrate by drawing 1. It is made to overflow once it holds "the raw material molten metal which dissolved the raw material electrode 5 supplied from the raw material level charging apparatus 4 with the electron beam from an electron gun 6" in cold HA-SU 3. They are the dissolution and casting drawn out as an ingot 7 from a lower part, casting this in the water cooling type copper mould 2, and making it solidify continuously. In addition, sign 6' in drawing shows the electron gun for keeping warm, and a sign 8 shows a vacuum pump.

[0019] By this method, the impurity which is easy to volatilize while piling up in cold HA-SU, in order to cast to mold, making the molten metal by which electron beam melting was carried out pile up into proper time cold HA-SU is fully vaporized and removed in vacuum environment, and the ingot of a high grade is obtained. then, "-- electron beam cold HA - a pickpocket -- this invention person who paid his attention to the high grade-ized operation which was excellent in melt method" When the manufacture experiment of ingot material was repeated with the application of this method to the dissolution and casting of Ta, Ta dissolution material obtained checked that impurities, such as gas constituents, were enough reduced by "the grade which hardly generates gas even if it uses it under an elevated temperature and a high vacuum" in spite of one dissolution operation. Moreover, the sum total gas-constituents content in Ta dissolution material is 100 ppm by this method. When it ingoted so that it might become the following, it also turns out other impurities (alkali metal, radioactive element, etc.) with which the content to Ta target is evaded, and that it is decreasing even on the level which can be admitted as an object for semiconductor devices. And these knowledge will contribute to completion of this invention greatly. in addition, electron beam cold HA - a pickpocket -- as a raw material with which melt is presented, Ta powder or Ta scrap is sufficient

[0020] Then, an example explains this invention still more concretely.

[Example] First, after filling up the tube made from unalloyed ti of commercial purity (outer diameter : 120mmx length : 800mmx thickness : 1mm) with Ta scrap, TIG arc welding of the unalloyed ti disk of commercial purity was carried out to tube ends opening, and dissolution electrode material was created. In addition, the component analysis value of Ta scrap used here was as being shown in Table 1.

[0021]

[Table 1]

	化 学 成 分 (重量割合)										
	%						ppm				
	Al	Fe	Ti	W	Nb	Nb	O	N	C	S	H
Ti ₁ -型Ta電極	0.001	0.005	3.7	10	20	2.0	2700	55	140	1	30
Ta溶型鑄塊	0.0003	<0.001	<0.001	10	15	2.0	30	12	27	<1	<1

[0022] next, ***** beam cold HA - which shows the above-mentioned dissolution electrode material to drawing. 1 - a pickpocket -- a melting facility -- surface-area:500cm² of dissolution chamber internal pressure:10-4mmbar, electron beam output:400 kW, melting-temperature:3200 degree C, and the molten metal in cold HA-SU, and casting speed:50 kg/hr -- it dissolved on conditions, and cast to the water cooling type copper mould, and Ta ingot was manufactured And although component analysis was performed about Ta ingot obtained by doing in this way, the result was as having written together to Table 1. clear from this table 1 -- as -- above-mentioned electron beam cold HA - a pickpocket -- it turns out that evaporation removal of the part for Ti which is easy to carry out a volatilization loss is carried out according to melting, and Ta ingot with high purity can be ingoted

[0023] Subsequently, between the colds (room temperature), the obtained aforementioned Ta ingot was set, and was forged at rolling-reduction:95%, and it considered as the plate. And 10-4mmbar after machining this, performing 29. surface processing finishing and preparing a target configuration and a size The same 100 ppm as it of Ta ingot which was made to give and recrystallize the vacuum heat treatment of 2 hours at 1100 degrees C under vacuum pressure, and the sum total of a gas-constituents content showed in Table 1 The diameter of average crystal grain manufactured below Ta target which has the uniform organization which is 500 micrometers.

[0024] Thus, when the spatter examination to a glass side was carried out using manufactured Ta target, there is also no generating of particle and thickness and membraneous quality were able to form both very uniform Ta thin film.

[0025]

[Summary of Effects] A very useful effect is brought about on industry -- as explained above, according to this invention, a contribution great to the improvement in a performance of a member which becomes possible [making stable offer of the spatter RINGUTA-get made from Ta which can form the homogeneous further excellent thin film], and uses Ta or Ta alloy thin film as compared with elegance is conventionally expectable.

[Translation done.]

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-264232

(43)公開日 平成6年(1994)9月20日

(51)Int.Cl. ⁵	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
C 2 3 C 14/34		A 9046-4K		
C 2 2 C 27/02	1 0 3			
C 2 2 F 1/18		G		

審査請求 未請求 請求項の数2 FD (全4頁)

(21)出願番号	特願平5-79055	(71)出願人	592258063 日鉱金属株式会社 東京都港区虎ノ門2丁目10番1号
(22)出願日	平成5年(1993)3月12日	(72)発明者	清水 史幸 茨城県日立市宮田町3453番地 日鉱金属株式会社日立精錬所内
		(72)発明者	矢野 俊宏 茨城県日立市宮田町3453番地 日鉱金属株式会社日立精錬所内
		(72)発明者	梅本 靖 茨城県日立市宮田町3453番地 日鉱金属株式会社日立精錬所内
		(74)代理人	弁理士 今井 毅

(54)【発明の名称】 Ta製スパッタリングターゲットとその製造方法

(57)【要約】

【目的】 Ta製スパッタリングターゲットを用いたスパッタリングにて、均一で高性能の薄膜を安定して得られる手立てを確立する。

【構成】 Ta製スパッタリングターゲットを、合計のガス成分含有量が100ppm以下で、かつ平均結晶粒径が1mm以下であるところの溶製したTaの塑性加工材にて構成する。また、このTa製スパッタリングターゲットを製造するため、合計のガス成分含有量が100ppm以下であるTa鑄塊を加工率：90%以上で冷間鍛造した後、0.1mmbar以下の真空中にて加熱温度：900～1300℃で熟処理し再結晶させる工程を採用する。

(2)

特開平6-264232

1

2

【特許請求の範囲】

【請求項1】 合計のガス成分含有量が100ppm以下で、かつ平均結晶粒径が1mm以下であるところの、溶製したTaの塑性加工材から成ることを特徴とするTa製スパッタリングターゲット。

【請求項2】 合計のガス成分含有量が100ppm以下であるTa銑塊を加工率：90%以上の条件で冷間鍛造した後、0.1mmbar以下の真空中にて加熱温度：900～1300℃で熱処理し再結晶させる工程を含むことを特徴とする、請求項1に記載のTa製スパッタリングターゲットの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】この発明は、半導体デバイスの製造や自動車等の熱線吸収ガラス被覆用として好適なTa（タンタル）製スパッタリングターゲット、並びにその製造方法に関するものである。

【0002】

【従来技術とその課題】従来、半導体デバイスにおける電極配線層間の絶縁膜にはSiO₂膜が適用されていたが、近年、LSIの高集積化が進んでSiO₂膜に対する不満が出てきたこともあって、SiO₂膜に代わりTa₂O₅薄膜を適用する試みが進んでいる。

【0003】そして、このTa₂O₅薄膜の形成には、有機反応ガスを用いてのCVD法や、Ta製スパッタリングターゲット（以降“Taターゲット”と略称する）を“アルゴン-酸素混合ガス”中でスパッタするスパッタリング法が用いられるが、総合的観点からはスパッタリング法が有利であるとされている。

【0004】一方、これまでVLSIの電極としてMoやW等の高融点金属シリサイド薄膜が使われてきているが、近年になってTaシリサイド膜が注目され、次期の電極材料として有望視されている。このTaシリサイド膜の形成にも幾つかの方法が考えられるが、その一つとして、Taターゲットを用いたスパッタリングにより多結晶シリコン上にTa膜を付着させ、その後シリコンとTaとを反応させてTaシリサイド膜とする手法がある。

【0005】また、最近では、自動車用ガラス等の表面を被覆する熱線吸収膜としてTaの薄膜を適用する試みもなされるようになり、このような方面からもTaターゲットの需要増が見込まれている。

【0006】ところで、“Ta”や“Taシリサイド”等の薄膜を形成するために使用される前記Taターゲットは、現在、工業的には電解法等によって得た金属Taを溶解してTaインゴットとし、これを加工して所望形状・寸法とする方法により製造されている。

【0007】しかしながら、上述のように適用分野が著しく拡大しつつある“Ta”及び“Ta合金”の薄膜ではあるが、本発明者等の詳細な検討によると、スパッタリングによった場合には、軽微ではあるものの形成される

“Ta”又は“Ta合金”の薄膜は均一性に欠けるきらいがあり、これを適用する半導体デバイスや熱線吸収ガラス等の性能に少なからぬ悪影響を及ぼすことが懸念された。

【0008】このようなことから、本発明が目的としたのは、Taターゲットを用いたスパッタリングに指摘される上記問題を払拭し、均一で高性能の薄膜を安定して得られる手立てを確立することである。

【0009】本発明者等は、上記目的を達成すべく鋭意研究を重ねた結果、次のような知見を得るに至った。

A) Taターゲットを用いたスパッタリングにて形成される薄膜の均一性に対しては使用するTaターゲットの結晶粒度が大きく影響しており、該結晶粒度は細かいほど好ましい傾向となるが、その平均結晶粒径を特に1mm以下に調整した場合に形成される薄膜の均一性改善効果が一段と顕著になる。

【0010】B) ところが、詳細な検討を進める過程で、確かに“Taターゲットの結晶粒微細化”は形成される薄膜の均一化に著効があるものの、結晶粒の微細化だけでは前記薄膜の均一性改善効果に限界があり、Taターゲットの平均結晶粒径を1mm以下とした場合であっても、工業的規模での成膜操作の際には半導体デバイス用や熱線吸収ガラス用等として十分満足できる程度に均一な薄膜を常時安定に形成するのが困難な場合のあることが明らかとなった。

【0011】C) しかるに、Taターゲット中のO、N、C、S、H等といったガス成分の合計含有量を工業製品としては類例のない100ppm以下にまで低減した上で、その平均結晶粒径を1mm以下に調整すると、形成される薄膜の均一性は飛躍的に改善され、工業的規模の成膜操作においても“得られる薄膜の不均一性”に起因した半導体デバイスや熱線吸収ガラス等の製品性能への悪影響は殆ど無視できる程度に抑えられる。

【0012】D) なお、ガス成分の合計含有量が100ppm以下の前記Taターゲットは、例えば、電子ビーム溶解した原料溶湯を一旦水冷式のコールドハース内に保持して不純物を真空環境へ逸散させ、これをモールド内へオーバーフローさせて連続的に凝固させつつインゴットとして下方から引き抜く「電子ビームコールドハースリメルト法」で得た“Taの鑄造インゴット”を出発材として製造することができる。

E) また、平均結晶粒径が1mm以下という微細組織のTaターゲットは、上記ガス成分量の少ない“Taの溶製材”に冷間で強加工を施し、これに特定条件の再結晶熱処理を施すことによって実現できる。

【0013】本発明は、上記知見事項等に基づいて完成されたものであり、“Taターゲットを、合計のガス成分含有量が100ppm以下で、かつ平均結晶粒径が1mm以下であるところの溶製したTaの塑性加工材にて構成した点”に大きな特徴を有し、更には「合計のガス成分含有

(3)

特開平6-264232

3

量が100ppm以下であるTa鑄塊を加工率：90%以上の条件で冷間鍛造した後、0.1mmbar以下の真空中にて加熱温度：900～1300℃で熱処理し再結晶させる工程を取り入れることによって、前記合計のガス成分含有量が100ppm以下で平均結晶粒径が1mm以下のTaターゲットを安定して製造できるようにした点」をも特徴としている。

【0014】ここで、Taターゲット中のガス成分含有量を合計で100ppm以下と限定したのは、合計のガス成分含有量が特に100ppm以下になると高真空中で使用した際のガスの放出量が激減してパーティクル発生が殆どなくなり、平均結晶粒径が1mm以下のTaターゲットにおいてガス成分含有量の合計が100ppm以下であると、スパッタリングして形成される薄膜の均一性（膜厚、膜特性）が飛躍的に改善されて成膜安定性も著しく向上するためである。そして、合計のガス成分含有量100ppm以下のTaターゲットを得るには「電子ビームコールドハースリメルト法」で得た「Taの鑄造インゴット」を出発材とすれば良いことは先に述べた通りであるが、出来ればターゲット中に含有される各ガス成分やその他の不純物成分は次のレベルにまで低減することが望ましい。

〈ガス成分〉

O：50ppm以下， N：50ppm以下， C：50ppm以下， S：10ppm以下， H：10ppm以下。

〈その他の不純物成分〉

Nb：0.01wt%以下， W：0.05wt%以下， Fe：0.01wt%以下， Al：0.01wt%以下， Ni：0.01wt%以下。

【0015】また、Taターゲットの平均結晶粒径を1mm以下と限定したのは、前述したように、平均結晶粒径が1mmを超えていると、例えばTaターゲット中のガス成分含有量が合計で100ppm以下であったとしてもスパッタリングにより形成される薄膜の均一性が十分でなく、半導体デバイスや熱線吸収ガラス等の製品性能への悪影響を拭い切れなくなるためである。更に、Taターゲットを「溶製材」としたのは、粉末冶金材では前述した微細結晶粒組織やガス成分含有量を達成できないことによる。

【0016】一方、Taターゲットを製造するに際して、まずTa鑄塊を90%以上の加工率で冷間鍛造するのは、該加工率が90%を下回ると、再結晶熱処理を施しても均一でかつ平均粒径：1mm以下の結晶粒を得ることができないからである。

【0017】また、再結晶熱処理条件を前記の如くに限定したのは次の理由による。

a) 加熱環境

加熱環境の真空程度が0.1mmbarを上回ると、酸素や窒素等のために被処理材表面が汚染され、材料歩留やスパッタリングにて得られる薄膜の性能に悪影響が出るためである。

b) 加熱温度

4

加熱温度が900℃未満であると十分な再結晶がなされないもので均一で微細な結晶粒組織が得られず、一方、1300℃を超えて加熱すると結晶粒の粗大化を招き、やはり均一微細な結晶粒組織を得ることができない。そして、上記条件で冷間鍛造・再結晶熱処理が施された材料から、機械加工によってTaターゲットが切り出される。

【0018】ところで、冷間鍛造に供するTa鑄塊は合計のガス成分含有量が100ppm以下となるように溶製されたものを用いるが、このような高純度のTa鑄塊を工業的に得るために「電子ビームコールドハースリメルト法」が適用される。この「電子ビームコールドハースリメルト法」とは、図1で例示するように、電子ビーム溶解設備の溶解チャンバー1内に設置された水冷式銅モールド2の前方に銅製水冷式のコールドハース3を設置し、「原料水平装入装置4から供給される原料電極5を電子銃6からの電子ビームで溶解した原料溶湯」を一旦コールドハース3内に保持してからオーバーフローさせ、これを水冷式銅モールド2内に鑄込んで連続的に凝固させつつ下方から鑄塊7として引き抜く溶解・鑄造法である。なお、図中の符号6'は保温用電子銃、符号8は真空ポンプを示す。

【0019】この方法では、電子ビーム溶解された溶湯を適宜の時間コールドハース内へ滞留させながら鑄型に鑄込むため、コールドハース内に滞留している間に揮発しやすい不純物が真空環境へ十分に揮散・除去されて高純度の鑄塊が得られる。そこで、「電子ビームコールドハースリメルト法」の優れた高純度化作用に着目した本発明者等は、該方法をTaの溶解・鑄造に適用して溶製材の製造実験を繰り返したところ、得られるTa溶解材は1回の溶解操作にもかかわらずガス成分等の不純物が「高温・高真空中で使用しても殆どガスを発生しない程度」にまで十分低減されることを確認した。また、この方法によってTa溶解材中の合計ガス成分含有量が100ppm以下となるように溶製すると、Taターゲットへの含有が忌避される他の不純物（アルカリ金属や放射性元素等）も半導体デバイス用として容認できるレベルにまで低減していることも分かった。そして、これらの知見が本発明の完成に大きく寄与することとなった。なお、電子ビームコールドハースリメルトに供する原料としては、TaパウダーでもTaスクラップでも良い。

【0020】続いて、本発明を実施例によって更に具体的に説明する。

【実施例】まず、商業純度の純Ti製チューブ（外径：120mm×長さ：800mm×肉厚：1mm）にTaスクラップを充填した後、チューブ両端開口に商業純度の純Ti円盤をTIG溶接して溶解電極材を作成した。なお、ここで使用したTaスクラップの成分分析値は、表1に示す通りであった。

【0021】

50 【表1】

(4)

特開平6-264232

	化 学 成 分 (重量割合)										
	%						ppm				
	Al	Fe	Ti	W	Mo	Nb	O	N	C	S	H
Ti ₆ Al ₄ 製Ta電極	0.001	0.005	3.7	10	20	2.0	2700	55	140	1	30
Ta溶製鋳塊	0.0003	<0.001	<0.001	10	15	2.0	30	12	27	<1	<1

【0022】次に、上記溶解電極材を図1に示す如き電子ビームコールドハースリメルティング設備で、

溶解チャンバー内圧力： 10^{-4} mmbar，

電子ビーム出力：400 kW，

溶解温度：3200℃，

コールドハース内溶湯の表面積：500 cm²，

鋳造速度：50 kg/hr

なる条件にて溶解して水冷式銅モールドに鋳造し、Ta鋳塊を製造した。そして、このようにして得られたTaインゴットについて成分分析を行ったが、その結果は表1に併記した通りであった。この表1からも明らかなように、上記電子ビームコールドハースリメルティングによると揮発ロスしやすいTi分は蒸発除去され、純度の高いTaインゴットを溶製できることが分かる。

【0023】次いで、得られた前記Ta鋳塊を冷間（室温）にて圧下率：95%で据え込み鍛造し、板材とした。そして、これを機械加工し、表面の加工仕上げを行ってターゲット形状・寸法を整えた後、 10^{-4} mmbarの真空圧力下において1100℃で2時間の真空熱処理を施して再結晶させ、ガス成分含有量の合計が表1に示したTa鋳塊のそれと同じ100 ppm以下で平均結晶粒径が500 μmの均一な組織を有するTaターゲットを製造した。

【0024】このようにして製造されたTaターゲットを用いてガラス面へのスパッタ試験を実施したところ、パ*

*ーティクルの発生もなく、膜厚、膜質が共に極めて均一なTa薄膜を形成することができた。

【0025】

【効果の総括】以上に説明した如く、この発明によれば、従来品と比較して均一性の更に優れた薄膜を形成することができるTa製スパッタリングターゲットを安定提供することが可能となり、Ta又はTa合金薄膜を利用する部材の性能向上に多大な寄与が期待できるなど、産業上極めて有用な効果がもたらされる。

【図面の簡単な説明】

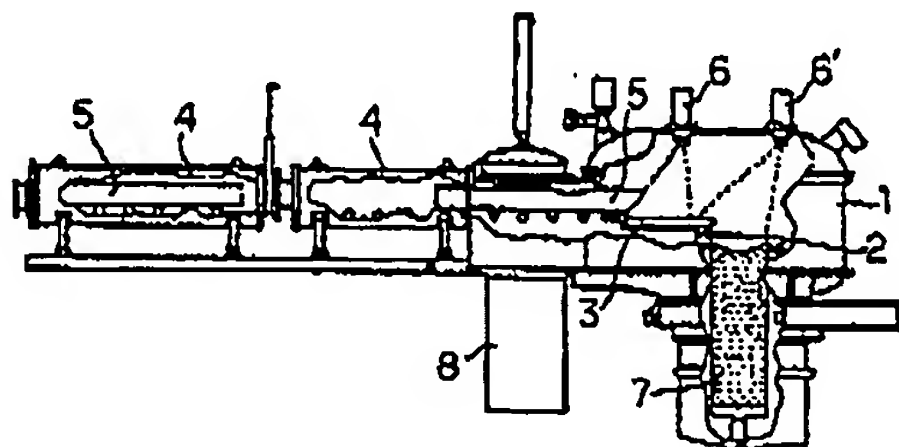
【図1】本発明法に適用し得る電子ビームコールドハースリメルト装置例の概要説明図である。

【図2】実施例で使用した溶解電極材の概要説明図である。

【符号の説明】

- 1 溶解チャンバー
- 2 水冷式銅モールド
- 3 コールドハース
- 4 原料水平装入装置
- 5 原料電極
- 6 電子銃
- 6' 電子銃
- 7 鋳塊
- 8 真空ポンプ

【図1】



【図2】

